

**PRODUCTION OF ALUMINUM NITRIDE SUBSTRATE**

Patent Number: JP6080473  
Publication date: 1994-03-22  
Inventor(s): KATSUBE SEIJI  
Applicant(s): TOSHIBA CORP  
Requested Patent: ☐ JP6080473  
Application Number: JP19920228883 19920827  
Priority Number(s):  
IPC Classification: C04B35/58; B28B3/00  
EC Classification:  
Equivalents:

---

**Abstract**

---

**PURPOSE:**To provide an aluminum nitride substrate having a small amount of molded article contracted during sintering and having high dimensional precision.

**CONSTITUTION:**A mixture of aluminum nitride raw material powder, a sintering auxiliary and an organic component such as binder is molded to mold a primary molded article and the prepared primary molded article is adjusted to a given density by pressurizing. Then the prepared secondary molded article is defatted and sintered in a nonoxidizing atmosphere. When the primary molded article is pressurized, the primary molded article is heated.

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2

[Title of the Invention]

## PRODUCTION METHOD OF ALUMINUM NITRIDE SUBSTRATE

[Abstract]

[Object] To provide an aluminum nitride substrate, with high size precision, in which a formed body has a small shrinking ratio at the time of sintering.

[Constitution] The production method comprises: forming a primary formed body by shaping a mixture containing an aluminum nitride raw material powder, a sintering agent, and an organic component such as a binder; forming a secondary formed body adjusted to have a prescribed density by pressurizing the obtained primary formed body; and degreasing the secondary formed body and firing the resulting formed body in non-oxidizing atmosphere. Alternatively, the primary formed body is heated at the time of pressurizing the primary formed body.

[Claims]

1. A production method of an aluminum nitride substrate, comprising:

forming a primary formed body by shaping a mixture containing an aluminum nitride raw material powder, a sintering agent, and an organic component such as a binder;

forming a secondary formed body adjusted to have a prescribed density by pressurizing the obtained primary formed body; and

degreasing the secondary formed body and firing the resulting formed body in non-oxidizing atmosphere.

2. The production method of an aluminum nitride substrate according to claim 1, wherein

the primary formed body is formed by a doctor blade method.

3. The production method of an aluminum nitride substrate according to claim 1, wherein

the primary formed body is heated at the time of pressurizing the primary formed body.

4. The production method of an aluminum nitride substrate according to claim 1, wherein

at least one of through holes or scrub lines are formed in the secondary formed body adjusted to have a prescribed density.

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]

The present invention relates to a production method of an aluminum nitride substrate and, more particularly, to a production method of an aluminum nitride substrate, with high size precision, in which a formed body has a small shrinking ratio at the time of sintering.

[0002]

[Prior Art]

Ceramic sintered bodies such as silicon nitride ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ), alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), and aluminum nitride ( $\text{AlN}$ ) excellent in a variety of properties such

as strength, heat resistance, corrosion resistance, wear resistance and light weight property as compared with those of conventional metal materials have been widely used as mechanical parts, functional parts, structural materials and ornamental materials such as semiconductors, electronic device materials, members for engines, materials for high speed cutting tools, nozzles and bearings for use under severe temperature, stress and wearing conditions under which the conventional metal materials could not be used.

[0003]

Conventionally, as a ceramic substrate for a semiconductor, generally those made of alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) have been used. Presently, alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) is economical as compared with aluminum nitride (AlN), having a raw material cost 1/50 to 1/20 times as low as that of aluminum nitride (AlN) and many raw material powders with different characteristic values such as particle size distribution or the like are made available. Therefore, high density formed body formation is made possible by filling fine particles among coarse particles and accordingly, the shrinking ratio at the time of firing can be relatively easily controlled. For that, a variety of sheet-like formed bodies can be obtained by a doctor blade method, a general forming method. Further, a semiconductor package in which the above-mentioned sheet-like formed bodies are layered in multilayers can be easily produced.

[0004]

On the other hand, an aluminum nitride (AlN) sintered body is an insulator having a high thermal conductivity and has a thermal expansion

coefficient close to that of silicon (Si), so that its use as a heat releasing plate and a substrate for a semiconductor device provided with a high power and highly integrated has been expanded.

[0005]

Conventionally, the AlN substrate is produced by mass production generally by the following production method. That is, at first a raw material mixture is prepared by adding a sintering agent, an organic binder, and based on necessity, a variety of additives, solvents, dispersants and the like to an aluminum nitride powder and the obtained raw material mixture is formed by a doctor blade method or a roll formation method to form a thin plate-shaped or sheet-shaped formed body or by press-forming to form a thick plate-shaped or large size formed body. Next, the obtained formed body is subjected to degreasing treatment by heating in air or nitrogen gas atmosphere to remove the hydrocarbon components or the like used as the organic binder from the formed body. The degreased formed body is then heated at a high temperature in nitrogen gas atmosphere and densely sintered to obtain an aluminum nitride sintered body.

[0006]

In the above-mentioned production method, in the case an ultrafine raw material powder with an average particle size of  $0.3\text{ }\mu\text{m}$  or less is used as the raw material AlN powder, a rather dense sintered body can be obtained from solely an AlN powder. However, in the sintering, a large quantity of impurities such as oxygen or the like adhering to the surface of the raw material powder form solid solutions in the AlN crystal lattice or compounded oxides such as Al-O-N compound or the like which interfere the

lattice vibration were formed, so that the thermal conductivity of an aluminum nitride sintered body using no sintering aid was relatively low.

[0007]

On the other hand, in the case an AlN powder with an average particle size of 0.5  $\mu\text{m}$  or more as a raw material powder was used, since the sintering property of the raw material powder alone is not so good, it was difficult to obtain a dense sintered body without addition of a sintering aid by any method other than a hot press method and the productivity was thus low. For that, in the case of efficiently producing a sintered body by a normal pressure sintering method, in order to densify a sintered body and prevent impurity oxygen in an AlN raw material powder from forming solid solution among AlN crystal particles, as a sintering aid, rare earth oxide such as yttrium oxide ( $\text{Y}_2\text{O}_3$ ) and alkaline earth oxides such as calcium oxide are generally added.

[0008]

These sintering aids are supposed to cause a reaction with impurity oxygen and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  contained in the AlN raw material powder to form a liquid phase and achieve densification of a sintered body and at the same time fix the impurity oxygen as a grain boundary phase to increase the thermal conductivity to high.

[0009]

[Problems to be Solved by the Invention]

However, aluminum nitride has a characteristic that the physical properties such as the thermal conductivity of an aluminum nitride substrate significantly vary depending on the content of oxygen and

impurities in the raw material stage as described above. Especially, by pulverization treatment, the oxygen content of a raw material powder is sharply increased or in the case of a coarse AlN raw material powder, the powder contains a large quantity of impurities and oxygen and consequently it results in decrease of the thermal conductivity of a substrate. In order to prevent decrease of the thermal conductivity, which is a basic characteristic of an aluminum nitride sintered body, it is obliged to use a single fine raw material powder having a particle size of 1 to 2  $\mu\text{m}$  by a reducing nitridation method by which the oxygen content can be suppressed. Accordingly, density adjustment of a formed body by mixing different raw materials with different particle size distribution values becomes difficult to be employed and inevitably, the control of the shrinkage ratio at the time of sintering becomes complicated to result in difficulty of obtaining an AlN substrate with a high size precision.

[0010]

Especially, in the case of employing a doctor blade method which is capable of producing sheet-like formed bodies by mass production, it practically becomes difficult to optionally increase the density of formed bodies and strictly adjust the density to be a prescribed value and an aluminum nitride sintered body easily has a defect such as warping and in any way, easy production of an AlN substrate with a high size precision at a high yield is difficult.

[0011]

The present invention has been made to solve the above-mentioned problems, and an object thereof is to provide a production method of an

aluminum nitride substrate capable of easily producing an aluminum nitride substrate, with high size precision, in which a formed body has a small shrinking ratio at the time of sintering.

[0012]

[Means for Solving the Problems]

The present inventors have made investigations of the effect of the density of a formed body on the size shrinkage ratio at the time of sintering and found that the shrinkage ratio becomes smaller as the density of formed body is closer to the theoretical density of a sintered body to obtain a substrate with high precision. It has also been found that the density of a formed body can be properly adjusted by pressurizing a primary formed body formed by a doctor blade method or the like to make it possible to obtain a substrate with high size precision.

[0013]

The present invention is accomplished on the basis of the above-mentioned finding. That is, a production method of an aluminum nitride substrate according to the present invention comprises: forming a primary formed body by shaping a mixture containing an aluminum nitride raw material powder, a sintering agent, and an organic component such as a binder; forming a secondary formed body adjusted to have a prescribed density by pressurizing the obtained primary formed body; and degreasing the secondary formed body and firing the resulting formed body in non-oxidizing atmosphere. Preferably, the primary formed body may be heated at the time of pressurizing the primary formed body.

[0014]



An aluminum nitride raw material (AlN) powder to be used in the method according to the present invention and to be a main component of a sintered body is a powder controlled to have an impurity oxygen content suppressed to 3% or less by weight and an average particle size of about 0.05 to 5  $\mu\text{m}$ , preferably 3  $\mu\text{m}$  or less in consideration of the thermal conductivity of the sintering property.

[0015]

As a sintering aid, oxides and nitrides of rare earth metals (such as Y, Sc, Ce, Dy), oxides of alkaline earth metals (Ca) or substances to be these compounds by sintering may be used and, especially, yttrium oxide ( $\text{Y}_2\text{O}_3$ ), cerium oxide ( $\text{CeO}$ ), and calcium oxide ( $\text{CaO}$ ) are preferable.

[0016]

The method of the present invention is considerably effective in the case as the forming method of a primary formed body, especially, a doctor blade method, by which adjustment of the density of a primary formed body is difficult, is employed. That is, a sheet-shaped primary formed body with low density prepared by the doctor blade method is pressurized to obtain a secondary formed body with higher density than that of the primary formed body. Although depending on the composition of a raw material mixture, the foregoing pressurizing force is preferably in a range of 100 to 500  $\text{kg}/\text{cm}^2$ , more preferably in a range of 200 to 300  $\text{kg}/\text{cm}^2$ .

[0017]

Further, heating of the primary formed body to 30 to 150°C at the time of pressurizing the primary formed body makes it possible to increase the density of the formed body within a short time and, thus, the time taken

for formation step can be shortened more.

[0018]

Further, through holes (conduction holes) and scrub lines (grooves) are formed in the secondary formed body with high density prepared as described above, so that through holes and scrub lines with high positioning precision and size precision can be formed to make production of a multilayer aluminum nitride substrate with excellent operation reliability possible.

[0019]

Successively to the foregoing secondary green formation process, the secondary formed body is heated at 400 to 800°C in air or a non-oxidizing atmosphere, for example, in nitrogen gas atmosphere to sufficiently remove the previously added organic binder thereto.

[0020]

A plurality of sheet-shaped secondary formed bodies subjected to the degreasing treatment are layered in multilayers in a firing furnace while a spread powder of a ceramic sintered powder of, for example, AlN, BN or the like being put between them and in such a state, a plurality of secondary formed bodies are collectively sintered at a prescribed temperature. The sintering step is carried out by heating the formed bodies at 1700 to 2000°C for 2 to 10 hours in non-oxidizing atmosphere of such as nitrogen gas. The sintering is carried out in atmosphere that is of nitrogen gas or reducing atmosphere containing nitrogen gas. As the reducing gas, H<sub>2</sub> gas or CO gas may be used. Incidentally, the sintering may be carried out in vacuum (including slightly reducing atmosphere), decreased pressure, pressurized,

or normal pressure atmosphere. If the firing is carried out in low temperature state lower than 1700°C sintering temperature, although it depends on the particle size of the raw material powder and the oxygen content, it becomes hard to obtain a dense sintered body and on the other hand, if firing is carried out at a temperature higher than 2000°C, the vapor pressure of the AlN itself in the firing furnace is increased and densification possibly becomes difficult, and therefore, the sintering temperature is set in the above-mentioned range.

[0021]

[Effects]

According to the production method of an aluminum nitride substrate by the above-mentioned manner, since a primary formed body with a low density is pressurized to obtain a secondary formed body with high density, an aluminum nitride substrate with scarce shrinkage and warp at the time of sintering and high size precision can be obtained.

[0022]

Further, heating of a primary formed body at the time of pressurizing the primary formed body makes it possible to form a secondary formed body with high density within a short formation time. Further, formation of through holes or the like in the stage of the secondary formed body with high density makes it possible to increase the positioning and shape precision of the through holes or the like and produce a substrate with reliable operability.

[0023]

[Examples]

Next, the effects of a production method of an aluminum nitride substrate according to the present invention will be described in details with reference to the following examples.

[0024]

#### Example 1

An aluminum nitride (AlN) powder with a purity of 99.0% or more and an average particle diameter of 1.5  $\mu\text{m}$  was made ready, and prescribed amounts of a sintering agent, an organic solvent and an acrylic binder were added and evenly mixed for 30 minutes by a ball mill to prepare a raw material slurry. Then, the viscosity of the obtained raw material slurry was adjusted, a large number of sheet-like primary formed bodies of AlN with a thickness of 0.8 mm were produced by a doctor blade apparatus. The density of each of the obtained primary formed bodies was 1.80 g/cm<sup>2</sup>.

[0025]

Successively, while being heated at 50°C, the obtained primary formed bodies were pressurized by pressurizing force of 200 kgf/cm<sup>2</sup> for 20 minutes to form secondary formed bodies with density of 1.95 g/cm<sup>2</sup>.

[0026]

Next, the obtained secondary formed bodies were punched and pierced by a die press to form through holes with a diameter of 0.5 mm and cut into substrate formed bodies with a square shape of length 50 mm  $\times$  width 50 mm.

[0027]

Finally, after being degreased at 500°C for 1 hour in air, the obtained substrate formed bodies were sintered at 1800°C for 5 hours in nitrogen gas

atmosphere to produce AlN substrates of Example 1.

[0028]

#### Example 2

While being heated at 100°C, the sheet-shaped primary formed bodies of AlN with a thickness of 0.8 mm prepared by a doctor blade method in Example 1 were pressurized by pressurizing force of 200 kgf/cm<sup>2</sup> for 20 minutes to form secondary formed bodies with a density of 2.00 g/cm<sup>2</sup>.

[0029]

Next, the obtained secondary formed bodies were punched and pierced by a die press to form through holes similarly to Example 1 and cut into square shape, and the obtained substrate formed bodies were degreased and sintered in the same conditions to form a large number of AlN substrates according to Example 2.

[0030]

#### Comparative Example 1

Without being heated and pressurized, the sheet-shaped primary formed bodies of AlN with a thickness of 0.8 mm prepared in Example 1 were punched and pierced to form through holes and cut into square shape similarly to Example 1 and the obtained substrate formed bodies were degreased and sintered to produce a large number of AlN substrates of Comparative Example 1 by such a conventional production method.

[0031]

For evaluation of the finishing size precision of the AlN substrates of Examples 1 and 2 and Comparative Example 1 obtained in the above-mentioned manner, the outer shape finishing size of each AlN

substrate and the finishing size of each through hole were respectively measured and the width of the dispersion from the standard value was compared to obtain the following results as shown in the following Table 1.

[0032]

[Table 1]

Sample No.	Dispersion of through hole diameter ( $\mu\text{m}$ )	Dispersion of outer shape size
Example 1	-19 to +21	-0.24 to +0.22
Example 2	-10 to +9	-0.14 to +0.15
Comparative Example 1	-53 to +55	-0.41 to +0.42

[0033]

As being made clear from the results shown in Table 1, the substrates obtained by sintering AlN formed bodies of Examples 1 and 2 subjected to density adjustment by pressurizing primary formed bodies under prescribed temperature conditions had the dispersion of the through hole diameter and outer shape size significantly decreased to about 1/5 to 1/2 of that of Comparative Example 1 which did not involve the density adjustment and thus it was confirmed that the AlN substrates with high size precision could be obtained.

[0034]

According to the production methods of these examples, substrates with high size precision can be obtained and at the same time AlN substrates with prescribed and standardized size can be produced at a high yield by adjusting the formed body density corresponding to dies.

[0035]

[Effects of the Invention]

As described above, according to a production method of an

aluminum nitride substrate of the present invention, since a primary formed body with low density is pressurized to obtain a secondary formed body with high density, it is possible to obtain an aluminum nitride substrate with scarce shrinkage and warp at the time of sintering and high size precision.

[0036]

Further, heating of a primary formed body at the time of pressurizing the primary formed body makes it possible to form a secondary formed body with high density within a short formation time. Further, formation of through holes or the like in the stage of the secondary formed body with a high density makes it possible to increase the positioning and shape precision of the through holes or the like and produce a substrate with reliable operatability.

[Written Amendment]

[Date of Submission] Oct. 7, 1992

[Amendment 1]

[Object Document Name of Amendment] Specification

[Object Item Name of Amendment] 0024

[Amendment Method] Alteration

[Contents of Amendment]

[0024]

Example 1

An aluminum nitride (AlN) powder with a purity of 99.0% or more and an average particle diameter of 1.5  $\mu\text{m}$  was made ready, and prescribed



amounts of a sintering agent, an organic solvent and an acrylic binder were added thereto and evenly mixed for 24 hours by a ball mill to prepare a raw material slurry. Then, the viscosity of the obtained raw material slurry was adjusted, a large number of sheet-shaped primary formed bodies of AlN with a thickness of 0.8 mm were prepared by a doctor blade apparatus. The density of each of the obtained primary formed bodies was 1.80 g/cm<sup>3</sup>.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-80473

(43) 公開日 平成6年(1994)3月22日

(51) Int. Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C04B 35/58	104	Q		
B28B 3/00		C 9261-4G		

審査請求 未請求 請求項の数 4 (全 5 頁)

(21) 出願番号	特願平4-228883
(22) 出願日	平成4年(1992)8月27日
	<p>(71) 出願人 000003078 株式会社東芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地</p> <p>(72) 発明者 勝部 成二 神奈川県横浜市鶴見区末広町2の4 株式 会社東芝京浜事業所内</p> <p>(74) 代理人 弁理士 波多野 久 (外1名)</p>

(54) 【発明の名称】 窒化アルミニウム基板の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 焼結時における成形体の収縮量が小さく、高い寸法精度を有する窒化アルミニウム基板提供する。

【構成】 窒化アルミニウム原料粉末と焼結助剤と結合剤などの有機成分との混合体を成形して一次成形体を形成し、得られた一次成形体を加圧することにより所定密度に調整した二次成形体を形成し、しかる後に得られた二次成形体を脱脂し、非酸化性雰囲気において焼結することを特徴とする。また一次成形体を加圧する際に一次成形体を加熱する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 窒化アルミニウム原料粉末と焼結助剤と結合剤などの有機成分との混合体を成形して一次成形体を形成し、得られた一次成形体を加圧することにより所定密度に調整した二次成形体を形成し、しかる後に得られた二次成形体を脱脂し、非酸化性雰囲気において焼結することを特徴とする窒化アルミニウム基板の製造方法。

【請求項2】 一次成形体はドクターブレード法を使用して形成することを特徴とする請求項1記載の窒化アルミニウム基板の製造方法。

【請求項3】 一次成形体を加圧する際に一次成形体を加熱することを特徴とする請求項1記載の窒化アルミニウム基板の製造方法。

【請求項4】 所定密度に調整した二次成形体にスルーホールおよびスクラプラインの少なくとも一方を形成することを特徴とする請求項1記載の窒化アルミニウム基板の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は窒化アルミニウム基板の製造方法に係り、特に焼結時における成形体の収縮量が小さく高い寸法精度を有する窒化アルミニウム基板の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来の金属材料と比較して強度、耐熱性、耐食性、耐摩耗性、軽量性などの諸特性に優れた窒化けい素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )、アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) や窒化アルミニウム ( $\text{AlN}$ ) などのセラミックス焼結体が、半導体、電子機器材料、エンジン用部材、高速切削工具用材料、ノズル、ベアリングなど、従来の金属材料の及ばない苛酷な温度、応力、摩耗条件下で使用される機械部品、機能部品、構造物や装飾品材料として広く利用されている。

【0003】 従来、半導体用セラミックス基板としては、一般にアルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 製のものが一般的に使用されている。現在アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) は窒化アルミニウム ( $\text{AlN}$ ) と比較して原料価格が1/20～1/50と安価であり、また粉末の粒度分布等の特性値が異なる原料粉末が多種類用意されている。そのため粗大粒子の間隙に微細粒子を充填することにより高密度成形体を形成することが可能であり、したがって焼結時の収縮率制御は、比較的容易である。このため一般的な成形方法であるドクターブレード法によって、種々のシート状成形体を得ることができる。また上記のシート状成形体を多層化した半導体パッケージも容易に製造することができる。

【0004】 一方窒化アルミニウム ( $\text{AlN}$ ) 焼結体は高熱伝導性を有する絶縁体であり、シリコン ( $\text{Si}$ ) に近い熱膨張係数を有することから高出力化、高集積化し

た半導体装置の放熱板や基板として、その用途を拡大している。

【0005】 従来  $\text{AlN}$  基板は一般的に下記の製造方法によって量産されている。すなわち、まず窒化アルミニウム粉末に焼結助剤と、有機バインダと、必要に応じて各種添加剤や溶媒、分散剤とを添加して原料混合体を調製し、得られた原料混合体をドクターブレード法やロール成形法によって成形し、薄板状ないしシート状の成形体としたり、原料混合体をプレス成形して厚板状ないし大型の成形体を形成する。次に得られた成形体は、空気または窒素ガス雰囲気において加熱され脱脂処理され、有機バインダとして使用された炭化水素成分等が成形体から排除脱脂される。そして脱脂された成形体は窒素ガス雰囲気等で高温に加熱され緻密化焼結されて窒化アルミニウム焼結体が形成される。

【0006】 上記製造方法において、原料  $\text{AlN}$  粉末として平均粒径が  $0.3\mu\text{m}$  以下程度の超微細な原料粉末を使用する場合は、 $\text{AlN}$  粉末単独でもかなりの緻密な焼結体が得られる。しかしながら、原料粉末表面等に付着した多量の酸素等の不純物が焼結時に、 $\text{AlN}$  結晶格子中に固溶したり、格子振動の伝播を妨げる  $\text{Al}-\text{O}-\text{N}$  化合物等の複合酸化物を生成する結果、焼結助剤を使用しない  $\text{AlN}$  焼結体の熱伝導率は比較的に低かった。

【0007】 一方原料粉末として平均粒径  $0.5\mu\text{m}$  以上の  $\text{AlN}$  粉末を使用する場合は、その原料粉末単独では焼結性が良好でないため、ホットプレス法以外には助剤無添加では緻密な焼結体を得ることが困難であり、量産性が低い欠点があった。そこで常圧焼結法によって効率的に焼結体を製造しようとする場合には、焼結体の緻密化および  $\text{AlN}$  原料粉末中の不純物酸素が  $\text{AlN}$  結晶粒子内へ固溶することを防止するために、焼結助剤として、酸化イットリウム ( $\text{Y}_2\text{O}_3$ ) などの希土類酸化物や酸化カルシウムなどのアルカリ土類金属酸化物等を添加することが一般に行なわれている。

【0008】 これらの焼結助剤は、 $\text{AlN}$  原料粉末に含まれる不純物酸素や  $\text{Al}_2\text{O}_3$  と反応して液相を形成し、焼結体の緻密化を達成するとともに、この不純物酸素を粒界相として固定し、高熱伝導率化も達成するものと考えられている。

## 【0009】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら窒化アルミニウムは、上記のように原料粉末段階における酸素や不純物の含有量によって窒化アルミニウム基板の熱伝導率等の物性が大きく変化する性質がある。特に粉碎処理することによって原料粉末の酸素含有量が急激に増加し、また粗大な  $\text{AlN}$  原料粉末についても不純物や酸素が多く、結果として基板の熱伝導率が低下してしまう欠点がある。このように  $\text{AlN}$  焼結体の基本特性である熱伝導率の低下を防止するため、通常は粒径が  $1\sim 2\mu\text{m}$  で粒径分布が狭く、酸素含有量が少ない還元窒化法によ

る微細な単一原料粉の使用を余儀なくされていた。そのため粒度分布が異なる原料粉を配合して成形体の密度を調整することが困難であり、必然的に焼結時の収縮率の制御が煩雑となり高い寸法精度を有するAlN基板を得ることが困難であった。

【0010】特にシート状成形体を量産できるドクターブレード法を使用する場合には、成形体の密度を任意に高めたり、所定値に厳密に調整することは実質的に困難であり、AlN焼結体に反り等の欠陥が生じ易く、いずれにしろ高い寸法精度を有するAlN基板を高い歩留りで製造することが困難となる問題点があった。

【0011】本発明は上記の問題点を解決するためになされたものであり、特に焼結時における成形体の収縮量が小さく、高い寸法精度を有する窒化アルミニウム基板を容易に製造することができる窒化アルミニウム基板の製造方法を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】本願発明者は、成形体の密度が焼結時の寸法収縮量に及ぼす影響を検討し、成形体の密度が焼結体の理論密度に近い程収縮量は小さくなり、高精度の基板が得られることを突きとめた。そして、ドクターブレード法等によって形成した一次成形体を加圧することにより成形体の密度を適正に調整でき、高い寸法精度を有する基板が得られることが判明した。

【0013】本発明は上記知見に基づいて完成されたものである。すなわち本発明に係る窒化アルミニウム基板の製造方法は、窒化アルミニウム原料粉末と焼結助剤と結合剤などの有機成分との混合体を成形して一次成形体を形成し、得られた一次成形体を加圧することにより所定密度に調整した二次成形体を形成し、しかる後に得られた二次成形体を脱脂し、非酸化性雰囲気において焼結することを特徴とする。また上記一次成形体を加圧する際に一次成形体を加熱するとよい。

【0014】本発明方法において使用され、焼結体の主成分となる窒化アルミニウム原料(AlN)粉末としては、焼結性および熱伝導性を考慮して不純物酸素含有量が3重量%以下に抑制され平均粒径が0.05~5μm程度、好ましくは3μm以下のものを使用する。

【0015】焼結助剤としては希土類元素(Y, Sc, Ce, Dyなど)の酸化物、窒化物、アルカリ土類金属(Ca)の酸化物、もしくは焼結操作によりこれらの化合物となる物質が使用され、特に酸化イットリウム(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化セリウム(CeO)や酸化カルシウム(CaO)が好ましい。

【0016】一次成形体の成形法としては、特に一次成形体の密度を調整することが困難であるドクターブレード法を使用する場合に本発明方法は極めて有効となる。すなわちドクターブレード法によって調製された低密度のシート状一次成形体を加圧することにより、一次成形体より密度が高い二次成形体を形成することができる。

上記加圧力としては原料混合体の組成にもよるが、100~500kg/cm<sup>2</sup>、より好ましくは200~300kg/cm<sup>2</sup>の範囲がよい。

【0017】また一次成形体の加圧時に一次成形体を30~150℃程度に加熱することにより、より短時間に成形体の密度を高めることが可能であり、成形工程の所要時間をより短縮することができる。

【0018】さらに上記のように調製した高密度の二次成形体の段階でスルーホール(導通孔)やスクライプライン(割り溝)を形成することにより、位置精度や寸法精度が高いスルーホールおよびスクライプラインが形成され、動作信頼性が高い多層窒化アルミニウム基板を形成することも可能である。

【0019】上記二次成形操作に引き続いて、二次成形体を空气中または非酸化性雰囲気中、例えば窒素ガス雰囲気中で温度400~800℃に加熱して、予め添加していた有機バインダを十分に除去する。

【0020】次に脱脂処理された複数のシート状の二次成形体は、例えばAlN, BN等のセラミックス焼結粉から成るしき粉を介して焼成炉内において多段に積層され、この配置状態で複数の二次成形体は一括して所定温度で焼結される。焼結操作は、窒素ガスなどの非酸化性雰囲気中で成形体を温度1700~2000℃に2~10時間程度加熱して実施される。焼結雰囲気は、窒素ガス、または窒素ガスを含む還元性雰囲気で行なう。還元性ガスとしてはH<sub>2</sub>ガス、COガスを使用してもよい。なお、焼結は真空(僅かな還元雰囲気を含む)、減圧、加圧および常圧を含む雰囲気で行なってもよい。焼結温度が1700℃未満と低温状態で焼成すると、原料粉末の粒径、含有酸素量によって異なるが、緻密な焼結体が得にくい一方、2000℃より高温で焼成すると、焼成炉内におけるAlN自体の蒸気圧が高くなり緻密化が困難になるおそれがあるため、焼結温度は上記範囲に設定される。

【0021】

【作用】上記構成に係る窒化アルミニウム基板の製造方法によれば、低密度の一次成形体をさらに加圧して高密度の二次成形体としているため、焼結時における反りや収縮が少ない高い寸法精度を有する窒化アルミニウム基板を得ることができる。

【0022】また一次成形体を加圧する際に一次成形体を加熱することにより、さらに短かい成形時間で高密度の二次成形体を形成することが可能となる。さらに高密度の二次成形体の段階でスルーホール等を形成することによりスルーホール等の位置形状精度も高まり、動作信頼性がより高い基板が得られる。

【0023】

【実施例】次に下記の実施例を参照して本発明に係る窒化アルミニウム基板の製造方法による効果をより具体的に説明する。

## 【0024】実施例1

純度99.0%以上で平均粒径1.5 $\mu$ mの窒化アルミニウム(A1N)粉末を用意し、所定量の焼結助剤、有機溶剤およびアクリルバインダを添加した後に、ボールミルにて30分間混合し均一な原料スラリーを調製した。次に得られた原料スラリーの粘度調整を実施した後にドクターブレード装置によって厚さ0.8mmのA1N製シート状一次成形体を多数調製した。得られた一次成形体の密度は1.80g/cm<sup>3</sup>であった。

【0025】次に得られた一次成形体を温度50℃に加熱保持しながら加圧力200kgf/cm<sup>2</sup>で20分間加圧することにより、密度が1.95g/cm<sup>3</sup>の二次成形体を形成した。

【0026】次に得られた二次成形体を金型プレスを使用して押圧穿孔して直径0.5mmのスルーホールを形成するとともに縦50mm×横50mmの正方形形状に外形切断して基板成形体とした。

【0027】次に得られた基板成形体を空気中にて温度500℃で1時間脱脂した後に窒素ガス雰囲気中で温度1800℃で5時間焼結して、実施例1に係るA1N基板を製造した。

## 【0028】実施例2

実施例1においてドクターブレード法を使用して調製し

試料 Na	スルーホール径のばらつき ( $\mu$ m)	外形寸法のばらつき
実施例1	-1.9 ~ +2.1	-0.24 ~ +0.22
実施例2	-1.0 ~ +0.9	-0.14 ~ +0.15
比較例1	-5.3 ~ +5.5	-0.41 ~ +0.42

【0033】表1に示す結果から明らかなように、一次成形体を所定温度条件下で加圧して密度調整を実施した実施例1~2のA1N成形体を焼結した基板においては、密度調整を実施しない比較例1の場合と比較してスルーホール径および外形寸法のばらつきが1/2~1/5程度に大幅に低減され、高い寸法精度を有するA1N基板が得られることが実証された。

【0034】このように本実施例に係る製造方法によれば、高い寸法精度の基板が得られるとともに金型に合せて成形体密度を調整することによって所定寸法規格のA1N基板を高い歩留りで製造することができた。

## 【0035】

た厚さ0.8mmのA1N製シート状一次成形体を温度1000℃に加熱保持しながら加圧力200kgf/cm<sup>2</sup>で20分間加圧することにより、密度が2.00g/cm<sup>3</sup>の二次成形体を形成した。

【0029】次に得られた二次成形体を、実施例1と同様に金型プレスでスルーホールを形成するとともに、正方形形状に外形切断し、得られた基板成形体を同一条件で脱脂焼結して実施例2に係るA1N基板を多数製造した。

## 【0030】比較例1

実施例1において調製した厚さ0.8mmのA1N製シート状一次成形体を、加熱加圧せずに、そのまま実施例1と同様にスルーホール穿孔し外形切断し、さらに脱脂焼結して従来製法による比較例1のA1N基板を多数製造した。

【0031】こうして得られた実施例1~2および比較例1に係るA1N基板の仕上り寸法精度を評価するために、各A1N基板の外形仕上り寸法およびスルーホールの仕上り寸法をそれぞれ測定し、その規格値からのばらつきの大きさを比較し、下記表1に示す結果を得た。

## 【0032】

## 【表1】

【発明の効果】以上説明の通り本発明に係る窒化アルミニウム基板の製造方法によれば、低密度の一次成形体をさらに加圧して高密度の二次成形体としているため、焼結時における反りや収縮が少ない高い寸法精度を有する窒化アルミニウム基板を得ることができる。

【0036】また一次成形体を加圧する際に一次成形体を加熱することにより、さらに短かい成形時間で高密度の二次成形体を形成することが可能となる。さらに高密度の二次成形体の段階でスルーホール等を形成することによりスルーホール等の位置形状精度も高まり、動作信頼性がより高い基板が得られる。

## 【手続補正書】

【提出日】平成4年10月7日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正内容】

【0024】実施例1純度99.0%以上で平均粒径 $1.5\mu\text{m}$ の窒化アルミ

ニウム (AlN) 粉末を用意し、所定量の焼結助剤、有機溶剤およびアクリルバインダを添加した後に、ボールミルにて24時間混合し均一な原料スラリーを調製した。次に得られた原料スラリーの粘度調整を実施した後にドクターブレード装置によって厚さ0.8mmのAlN製シート状一次成形体を多数調製した。得られた一次成形体の密度は $1.80\text{g}/\text{cm}^3$ であった。